



TITLE:

誘導ラマン散乱の量子論II

AUTHOR(S):

高野, 文彦; 西川, 恭治

CITATION:

高野, 文彦 ...[et al]. 誘導ラマン散乱の量子論II. 物性研究 1966, 7(3): 209-228

ISSUE DATE:

1966-12-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/85973>

RIGHT:

誘導ラマン散乱の量子論 II

高 野 文 彦 (東京教育大理)

西 川 恭 治 (京 大 理)

(11月15日受理)

§ 1 Introduction

前稿¹⁾で我々は誘導ラマン効果の量子論を展開したが、本稿では、我々の理論と Shen-Bloembergen^{2) *}に代表される波動理論との関係を論じ、あわせて前稿の若干の修正を行う。

まず § 2 では、S.B. の要約を行い、彼らの理論からえられる永年方程式が我々の導いたもの (前稿 (22) 式^{**}) と本質的に同型であることを示す。このことは、当面の問題に関する限り、波動理論と光子理論の間には本質的な差異がないことを示す。しかし、この永年方程式の解き方において、S.B. と我々とは著しく異っている。すなわち、S.B. は振動数を実にとつて波数が複素数になる条件 (すなわち空間的増巾の条件) を出しているのに対して、我々は波数を実にとつて振動数が複素数になる条件 (時間的増巾の条件) を求めている。この解き方の差は、えられる結果にも著しい相違を生ずる。例えば、S.B. の方法では、光学的フォノンの減衰 Γ と分散とを共に無視すると、散乱光はすべての振動数にわたつて増巾も減衰も示さないのに対して、我々の方法では、むしろ $\Gamma = 0$ の場合に著しく大きな増巾又は減衰を生ずる。この違いは Γ の増大と共に減少するが、このあたりの事情を § 3 で考察する。§ 4 では、我々の解き方と S.B. の解き方との差が最も著しく現われる $\Gamma = 0$ の場合についてくわしく調べ、あわせて前稿に対する若干の修正を行う。^{***}最後に § 5 で、まとめて討論を行う。

*) 以下 S.B. と略す。

**) ただし本稿の Appendix I に示すような若干の補正を行う必要がある。

***) 前稿に対する主要な誤りの修正は Appendix II にまとめてある。

§ 2 S.B. 理論との対応

前稿での我々の取り扱い、量子論とはうたっているものの、いろいろな量子状態の間のコヒーレンスを完全にとり入れている点で、古典的な波動論と本質的に同じことをしている筈である。従つて、両者の関係を調べてみるのも大いに興味のあることである。そのために、波動論では一番くわしいと思われる S.B. 理論との比較を試みる。

まず反ストークス光を無視した場合の S.B. 理論を簡単に紹介しておこう。S.B. は物質の振動のモード Q_V を光学的フォノンと考え、これとレーザー光、ストークス光の電場 E_I , E_S との連立した波動方程式を作る。それには

$$\begin{aligned} E_I &\sim e^{i(\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r} - \omega_I t)} \\ E_S &\sim e^{i(\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r} - \omega_S t)} \\ Q_V &\sim e^{i(\mathbf{k}_V \cdot \mathbf{r} - \omega_V t)} \end{aligned}$$

ただし

$$\mathbf{k}_S + \mathbf{k}_V = \mathbf{k}_I, \quad \omega_S + \omega_V = \omega_I \quad (1)$$

として、次の方程式がえられる。

$$\begin{aligned} (\omega_0^2 - \beta^2 k_V^2 - \omega_V^2 + 2i\omega_V \Gamma) Q_V &= \lambda E_I^* E_S \\ (k_S^2 - \epsilon_S \omega_S^2 / c^2) E_S &= \frac{4\pi\omega_S^2}{c^2} \lambda Q_V^* E_I \end{aligned} \quad (2)$$

ただし、フォノンのスペクトルは $\sqrt{\omega_0^2 - \beta^2 k_V^2}$ で与えられているとし、またフォノンの減衰を現象論的に Γ を導入して考慮している。光の減衰は電媒常数 ϵ_S が虚部をもつものとして考慮しているが、それは以下の議論では重要ではないので、以下では考えない。 λ は 2 つの波の相互作用の強さを表わす定数で、物質の分極率 α の Q_V による変化 $(\partial\alpha/\partial Q_V)_0$ に比例している。さて、(2) が nontrivial な解をもつ条件として、永年方程式

$$(k_S^2 - \frac{\epsilon_S \omega_S^2}{c^2})(\omega_0^2 - \beta^2 k_V^2 - \omega_V^2 + 2i\omega_V \Gamma) = \frac{4\pi\omega_S^2}{c^2} \lambda^2 |E_I|^2 \quad (3)$$

がえられ、これと(1)とが ω_V または ω_S と k_V または k_S との関係(分散式)を与える。

さて、我々の場合、(3)に対応する式は前稿(21)式^{*}の第2式の左辺を0とおいた式である。すなわち

$$(\omega + \omega - K)(\omega^2 - \epsilon^2) + 2\epsilon N_V |V_{-K}|^2 = 0 \quad (4)$$

我々は振動のモードは局在していると考えたから $\beta=0$ であり、また減衰を考慮に入れていないのでS.B.でいうと $\Gamma=0$ としたことに対応する。するとS.B.の式(3)は

$$\left(\frac{c^2 k_S^2}{\epsilon_S} - \omega_S^2\right)(\omega_0^2 - \omega_V^2) = \frac{4\pi\omega_S^2}{\epsilon_S} \lambda^2 |E_l|^2$$

となるが、S.B.の記号を我々の定義と比較すると

$$\omega_0 \rightarrow \epsilon, \quad \frac{ck_S}{\sqrt{\epsilon_S}} \rightarrow \omega_l + \omega_{-K}, \quad \omega_S \rightarrow \omega_l - \omega \quad (5)$$

であるから、この式は

$$\begin{aligned} & (2\omega_l + \omega_{-K} - \omega)(\omega + \omega_{-K})(\epsilon^2 - \omega^2) \\ & = \frac{4\pi\omega_S^2}{\epsilon_S} \lambda^2 |E_l|^2 \end{aligned} \quad (3')$$

となり、 $2\omega_l + \omega_{-K} - \omega \approx 2\omega_S$ である事を考慮すると

$$U_{-K} \equiv N_V |V_{-K}|^2 = \frac{\pi\omega_S}{\epsilon_S \omega_0} \lambda^2 |E_l|^2 \quad (6)$$

とおけば、(3)は(4)と同じになる事が分る。

次に反ストークス光を考慮に入れた場合、S.B.ではかなり複雑な式であるが、

^{*} 前稿では(21)式の番号がぬけているが、p244の一番下にある式である。

高野、西川

上と同じように、 $\beta, \Gamma \rightarrow 0$ の極限では (S.B. (50) 式をみよ)

$$\left\{ \frac{c^2 k_s^2}{\epsilon_s} - \omega_s^2 + \frac{4\pi\omega_s^2}{D^*\epsilon_s} \lambda^2 |E_l|^2 \right\} \times \\ \left\{ \frac{c^2 k_a^2}{\epsilon_a} - \omega_a^2 + \frac{4\pi\omega_a^2}{D^*\epsilon_a} \lambda^2 |E_l|^2 \right\} = \frac{\omega_s^2 \omega_a^2}{D^*\epsilon_s \epsilon_a} (4\pi\lambda^2)^2 |E_l|^4 \quad (7)$$

ただし

$$D^* = \omega_V^2 - \omega_0^2 \quad (8)$$

$$k_s + k_a = 2k_l, \quad \omega_s + \omega_a = 2\omega_l$$

となる。ここで前と同じようなおきかえをし、さらに我々の用いた $x = \omega - \omega_0$ を使うと

$$\omega_V - \omega_0 \rightarrow x, \quad D^* \sim 2\omega_0 x, \quad (9)$$

$$\frac{ck_s}{\sqrt{\epsilon_s}} - \omega_s = x + \delta, \quad \frac{ck_a}{\sqrt{\epsilon_a}} - \omega_a = -x + \delta$$

となるから、これを(7)に入れて整理すれば前稿 (25) 式と完全に一致する事が分る。

こうして我々の導いた式は、実は S.B. の特別な場合に当る事が分つたが、我々の方法でも、Appendix I に示す通り、 β や Γ を考慮に入れる事ができ、その結果は S.B. と全く同じになる事が示せる。

こうして我々の方法は、S.B. の波動的取り扱いと本質的に同じであり、従つて結果も同じになるはずであるが、実は永年方程式の導き方の違いに関連して、その解き方に違いが現われ、これがえられた結果に大きな差をもたらしている事が分る。次節ではこの点について論ずる事にしよう。

§3 S.B. との解き方の相違

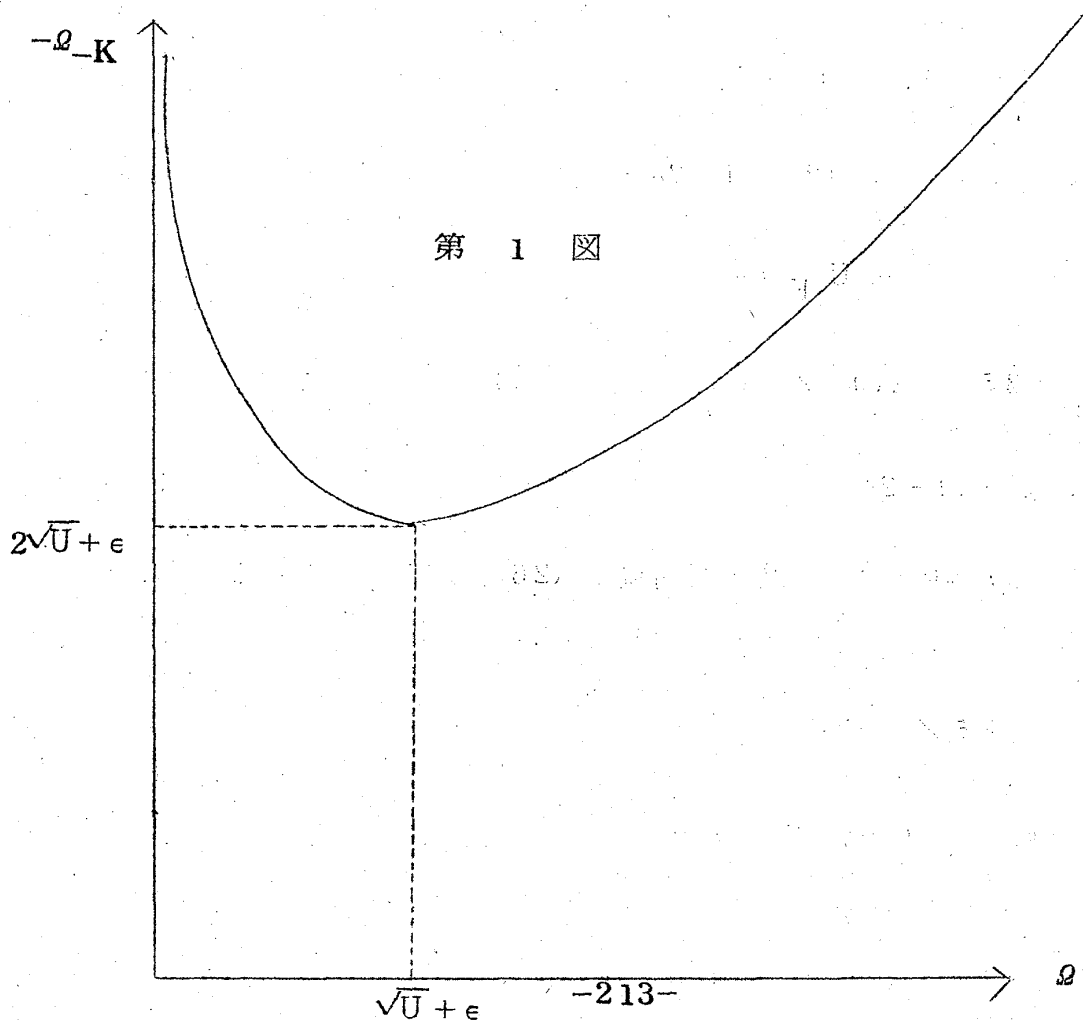
S.B. の方法では、与えられた振動数 ω_s の波が分子と相互作用しながら伝播しつつ、空間的に増巾して行く条件を求めているのに対して、我々の方法では、波数 k_s で指定された光子が、分子と相互作用しながら、時間的にその数

を増して行く条件を求めている。これは、永年方程式で云えば、 ω_s を実にして k_s が複素数になる条件を求める (S.B.) か、 k_s を実にして ω_s が複素数になる条件を求める (我々) かの差である。ちよつと考えると、この2つには大きな差はないような気がするが、実はそうではなく、結果は一般に異なる。

簡単のため、再びストークス光だけの場合を考えてみる。 $\Gamma=0$, $\beta=0$ とし求められた(3)又は(4)式は、 $\Omega + \epsilon \sim 2\epsilon$, $2\omega_l + \Omega_{-K} - \Omega \sim 2\omega_l$ においてし
まうと、

$$(\Omega + \Omega_{-K})(\Omega - \epsilon) + U_{-K} = 0$$

とかけるが、この式は k_s すなわち Ω_{-K} については1次式であり、 Ω については2次式である。したがつて Ω_{-K} のある値に対しては Ω は複素数になりうるが、 Ω として実数をとると Ω_{-K} はいつも実数になり増巾条件は出て来ない。この事情は、実数の Ω_{-K} と Ω の関係をグラフに書いてみればすぐに分る (第一図)。



高野、西川

すなわち、任意の Ω に対して実数の Ω_{-K} は必ずただ 1 個存在するが、 Ω_{-K} を与えた時は実数の Ω は必ずしも存在するとは限らない。従つてこの場合は、我々の方法では増巾条件がえられるが、S.B. の方法では増巾は不可能という事になる。S.B. の方法で増巾条件を出すには、フォノンのスペクトルの波数依存性 ($\beta \neq 0$) か、又はフォノンの減衰が存在する事 ($\Gamma \neq 0$) のいずれかが必要であつた事になる。同様の結果は、反ストークス光を考慮に入れても成り立つ。

ところで、この解き方の差による違いは、 $\Gamma \neq 0$ ではそれほど顕著に現われず、特に $\Gamma \rightarrow \infty$ の極限ではほとんど消えてしまう。それを見るために、 $\Gamma \neq 0$ の場合の永年方程式を調べてみよう。前と同様 $\beta = 0$ とするが、今度は反ストークス光も考慮に入れて考える。永年方程式は、Appendix I に示すように、S.B. でも我々の方法でも同等になる。まず k を実数にとり

$$x \equiv \Omega - \epsilon = \xi + i\eta \quad (\xi, \eta \text{ は実数})$$

とおくと、(A.7) 式は

$$\begin{aligned} & \xi^3 - (A - 2\delta)\xi^2 - (A\delta - \delta^2 - A)\xi - 3\xi\eta^2 \\ & + (A - 2\delta)\eta^2 - \Gamma\eta(2\xi - A + 2\delta) \\ & = U_{-K} A - \delta A \end{aligned} \quad (10a)$$

$$\begin{aligned} & -\eta^3 + 3\xi^2\eta - 2(A - 2\delta)\xi\eta - (A\delta - \delta^2 - A)\eta \\ & + \Gamma[\xi^2 - (A - 2\delta)\xi + A\delta - \delta^2 - \eta^2] = 0 \end{aligned} \quad (10b)$$

となる。この式で $\Gamma = 0$ とおいた式が前稿の (26)、(27) 式である。今、 $\Gamma \gg \sqrt{U_{\pm K}}$ として

$$\xi = \xi_0 + \xi_1/\Gamma + \xi_2/\Gamma^2 + \dots \quad (11)$$

$$\eta = \eta_0 + \eta_1/\Gamma + \eta_2/\Gamma^2 + \dots$$

と展開し、 ξ_1, η_1 を次々にきめると、まず (10a)、(10b) で Γ に比例する項より

$$\eta_0 (1 - 2\delta - 2\xi_0) = 0$$

$$\eta_0^2 = (\xi_0 - 1 + \delta)(\xi_0 + \delta)$$

あるいは

$$\eta_0 = 0, \quad \xi_0 = 1 - \delta, \quad -\delta$$

がえられる。このうち、 $\xi_0 = 1 - \delta$ の方の解は、次の次数の項から $\eta_1 = -U_{-K} < 0$ となり時間的に増大する解にはならないが、 $\xi_0 = -\delta$ の方は $\eta_1 = U_{-K} > 0$ となり増大する解を与える。こうして増巾条件をみたす解として

$$\xi = -\delta + o(1/\Gamma^2) \quad (12)$$

$$\eta = U_{-K}/\Gamma + o(1/\Gamma^2)$$

がえられる。

一方、 ω を実数にして k について増巾条件を求めると、S.B. における $\Gamma \rightarrow \infty$ の式 (57) から

$$-\mathcal{I}_m(4K) = -\frac{2\pi\omega_S^2}{c^2 k_{SZ}^m} \mathcal{I}_m \chi_S |E_l|^2$$

という成長率をもつ解がえられる。ただし S.B. と同じ記号を用い、又電媒常数の虚数部分を無視した。ここで

$$\chi_S = -\frac{\lambda^2}{D^*} \sim \frac{\lambda^2}{2i\omega_V \Gamma}$$

を考慮すると

$$-\mathcal{I}_m\left(\frac{c}{\sqrt{\epsilon_S}} 4K\right) = \frac{1}{\Gamma} \frac{\pi\omega_S^2 \lambda^2}{c\omega_V k_{SZ}^m \sqrt{\epsilon_S}} |E_l|^2$$

$$= \frac{U_{-K}}{\Gamma} \frac{\sqrt{\epsilon_S} \omega_S}{ck_{SZ}^m} \quad (13)$$

となる。(13) を (12) と比べると、少し異なるが、その差は $k_{SZ}^m \sim k_S$ では無視しうる程度である事が分る。

こうして S.B. と我々との差は、 $\Gamma \rightarrow \infty$ ではあまり現われないが、 $\Gamma \rightarrow 0$ では質的にも顕著に現われる事が分つた。そこで次節では、この差の最も著しい $\Gamma \rightarrow 0$ の場合について、くわしく考察する事にしよう。

§4 $\Gamma \rightarrow 0$ の場合

簡単のため、前節と同様フォノンの分散は無視する ($\beta = 0$) ことにしよう。すると、 $\Gamma \rightarrow 0$ における永年方程式は前稿 (26)、(27) 式に帰着する。ここでは特に、次の 3 つの問題についてくわしく考察する事にする。

- i) Weak-coupling limit : $A \gg \sqrt{U_{+K}} \gg |\delta|$ 。
- ii) Intermediate coupling における数値計算の結果。
- iii) Linear matching $A=0$, $\delta=0$ が成り立つ場合。

このうち、i) と iii) の場合については前稿でも一部考察したが、それには若干のあやまりもあつたので、本稿ではその修正もかねてよりくわしく調べる事にする。

i) Weak-coupling limit :

前稿でも述べたように、 A が大きい場合とは散乱角 θ が大きい場合に対応し、また δ が小さい場合とは成長率の最も大きい波数領域に話を限る事に対応する。まず前稿 (26) 式の次の 3 つの性質に着目する。

- i) $A \rightarrow \infty$ で ξ は有限な値に収束する。
- ii) $\delta \rightarrow 0$ で ξ は有限な値に収束する。
- iii) $A \rightarrow -A$, $\delta \rightarrow -\delta$ とすると $\xi \rightarrow -\xi$ となる。

この 3 つの性質から、前稿 (26) 式の解は次の形に展開できる事が分る。

$$\xi = \frac{1}{A} \xi_{10} + \delta \xi_{01} + \frac{1}{A^3} \xi_{30} + \frac{\delta}{A^2} \xi_{21} + \frac{\delta^2}{A} \xi_{12} + \delta^3 \xi_{03} + \dots \quad (14)$$

この展開を前稿 (26) 式に適用して逐次係数を求めて行くと、簡単な計算から次の結果がえられる。

$$\begin{aligned}\xi_{10} &= -\frac{U_{+K}}{2}, \quad \xi_{01} = -\frac{1}{2}, \\ \xi_{30} &= \frac{U_K(U_{+K} + U_{-K})}{2}, \quad \xi_{21} = -\frac{U_K}{2} \\ \xi_{12} &= 0, \quad \xi_{03} = 0, \dots\dots\end{aligned}\tag{15}$$

これを前稿 (27) に代入して整理すると

$$\eta^2 = U_{-K} - \frac{1}{4}\left(\delta - \frac{U_K}{A}\right)^2 - \frac{U_{-K}U_K}{A^2} + \dots\dots\tag{16}$$

となる。*) 以上は $\Gamma = 0$ の場合に求められたものだが、 Γ が有限の時にも充分小さくさえあれば ($\Gamma \ll \sqrt{U_{+K}}$)、(16) を η の最低次について (10a) 式に代入し、補正項を計算する事ができる。その結果も含めて、結局成長率 η は

$$\begin{aligned}\eta &= \sqrt{U_{-K}} \left\{ 1 - \frac{1}{8U_{-K}}\left(\delta - \frac{U_K}{A}\right)^2 - \frac{U_K}{2A^2} + \dots\dots \right\} \\ &\quad - D_2 + \dots\dots\end{aligned}\tag{17}$$

という形に展開できる事が分る。(17) 式から我々は、weak-coupling の場合の成長率 η について次の結論を導く事ができる。

- a) $\sqrt{U_{-K}}$ が η の上限を与える。
- b) U_{+K} を与えられたものとする、 A が大きい程成長率は大きい。
- c) 同じ条件の下で、与えられた A に対して $\delta = U_K/A$ が成長率の最大を与える。

*) 前稿 (31), (32) 式はあやまつていた。

高野、西川

d) Γ を 0 から次第に増して行くと、成長率は減少する。

このうち、a) は weak-coupling limit に限らず一般にも云えるようである。一方 b), c) は A があまり大きくなると (すなわち角 θ が 90° に近づくと) もはや $U_{\pm K}$ を δ や A と独立に考える事ができなくなるので、そのまま受け入れるわけにはいけないと思われる。最も注目すべきなのは d) で、これは S.B. の場合と全く対照的である。

次に上の結果を利用して反ストークス光の line shape を調べてみよう。反ストークス光のストークス光に対する強度の比は、前稿 (21) 式より

$$\left| \frac{a_K}{a_{-K}^*} \right|^2 = \frac{U_K U_{-K}}{|(\Omega - \Omega_K)(\Omega - \epsilon) - U_K|^2} \equiv \alpha$$

で与えられる。簡単のため $A=0$, $U_{\pm K}=U$ とおき、(14) ~ (16) の展開を代入すると、上式は

$$\alpha = \frac{U^2}{[\xi(\xi + \delta - A) - U - \eta^2]^2 + (2\xi + \delta - A)^2 \eta^2} \quad (18)$$

$$\equiv \frac{U}{A^2 + 3U - A\delta} \quad (18)'$$

と書かれる。ここでストークス光と反ストークス光の強度の和が一定とし、また入射レーザー光のパルスは時間 At の間だけ続いたとすると、反ストークス光の強度 I は

$$\frac{I}{I_0} = \frac{\alpha}{1+\alpha} e^{2\eta At} \quad (19)$$

$$= \frac{U}{A^2 + 4U - A\delta} \exp\left\{2\sqrt{U} At \left[1 - \frac{(\delta - \frac{U}{A})^2}{8U} - \frac{U}{2A^2}\right]\right\} \quad (19)'$$

となる。ただし I_0 は散乱光のノイズの強度で、それはストークス光とも同じとし、また入射レーザー光の強度は At の間一定とした。(19)' は反ストークス光の強度を A 及び δ の関数として表わしたもののだが、今特に δ の値として右辺を最大にするようにえらぶと

$$\delta \simeq \frac{U}{A} \left\{ 1 + \frac{2}{\sqrt{U} \Delta t} \right\}$$

となり、これを (19)' に代入すると

$$\begin{aligned} \frac{I}{I_0} = & e^{2\sqrt{U} \Delta t} \frac{U}{A^2} \left\{ 1 - \frac{U}{A^2} \left(3 - \frac{2}{\sqrt{U} \Delta t} \right) \right\} \times \\ & \exp \left\{ -\frac{U}{A^2} \left(\sqrt{U} \Delta t + \frac{1}{\sqrt{U} \Delta t} \right) \right\} \end{aligned} \quad (20)$$

となる。これが weak-coupling における反ストークス光の角分布をきめる式である。この式は、

$$\frac{A^2}{U} = 3 + \sqrt{U} \Delta t - \frac{1}{\sqrt{U} \Delta t} \quad (21)$$

で最大値をとり、 $A^2 \gg U$ では

$$\frac{I}{I_0} \sim \frac{U}{A^2} \exp [2\sqrt{U} \Delta t]$$

となる。

ところで、(20) 式が使えるためには、レーザー光の強度が一定である事、及び weakcoupling 近似が使える事が必要であつた。前者は、散乱光の強度が入射光の強度より充分小さければよい。今、入射光の強度を 1 MW/cm^2 とすると、この条件は、成長率にほんやくして

$$\sqrt{U} \Delta t \lesssim 60 \quad (22)$$

と書かれる。一方、weak-coupling の条件から、 $A^2 U$ は少なくとも 100 程度はなくてはならない。この事から、(21) は今の近似の範囲内では満されない事が分る。すなわち、(20) 式は、反ストークス光の強度が最大となる附近では最早正しくないという事になる。

ii) Intermediate Coupling における数値計算。

1) での考察から明らかなように、反ストークス光の角分布を調べるには、

高野、西川

δ/U がそれ程大きくない領域、すなわち intermediate coupling の領域の計算がどうしても必要になる。この領域では、しかし適当な近似法が思い当たらないので、我々は数値計算を試みた。基礎とする式は前稿 (26)、(27) 及び本稿 (18) 式で、簡単のため $A=0$ 、 $U=$ 一定として、 δ 及び A の値をいろいろ変えて計算を行つた。その結果まず $\sqrt{U} \Delta t = 10$ とえらんだ時の (19) の最大値は、

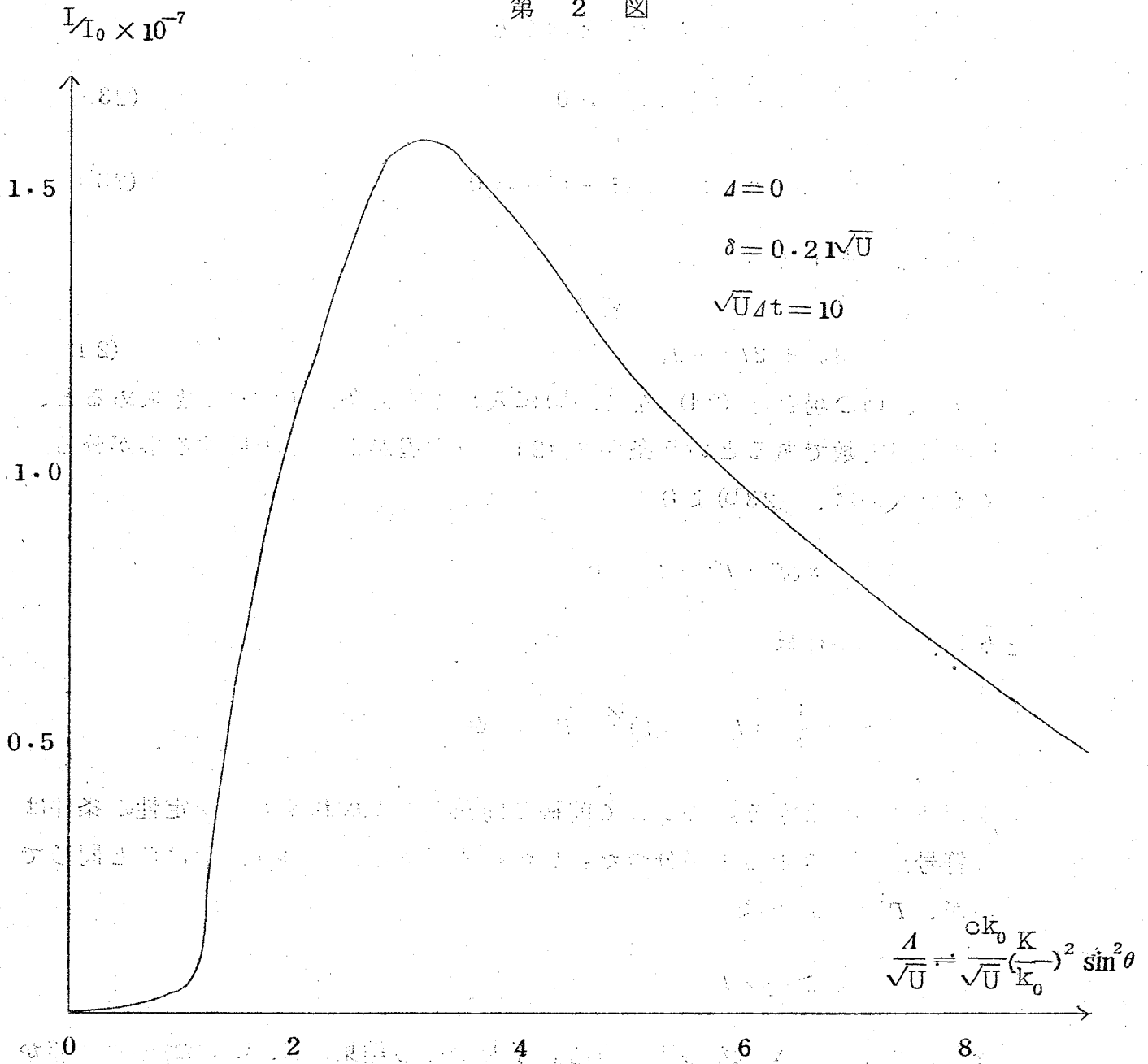
$$\delta = 0.21\sqrt{U}, \quad A = 3.2\sqrt{U}$$

$$I/I_0 = 1.57 \times 10^7, \quad \alpha = 0.08$$

と求められた。今、典型的な数値として、 $\Delta t = 10^{-8} \text{ sec}$ (すなわち $\sqrt{U} = 10^9 \text{ sec}^{-1}$)、 $k_0 = 10^4 \text{ cm}^{-1}$ 、 $K = 10^3 \text{ cm}^{-1}$ とえらんで、前稿 (28) 式より θ を求めると、 $\theta \simeq 1.5^\circ$ となる。これを更に、反ストークス光と入射光とのなす角に直すと 8 分程度となり、予想される通り、反ストークス光は非常に強い指向性をもつ事が分る。この指向性は、入射光の強度がますと弱められるが、それでも (22) の範囲内では高々 1° ぐらいに止まる事が示せる。一方、反ストークス光のストークス光に対する強度の比 α は、やはり入射光の増加とともに減少するが、その変りうる範囲は大体 $0.03 \sim 0.1$ の間である。このように、今の近似の範囲内では、反ストークス光はそれ程強くない事が分る。最後に、 $\delta = 0.21\sqrt{U}$ とえらんだ時の反ストークス光の角分布を計算したので、それを第 2 図に示す。

誘導ラマン散乱の量子論II

第 2 図



高野、西川

Ⅲ) $A=0$, $\delta=0$ の場合。

前稿でものべたように、この場合には A の正負によつて散乱光の不安定性が起きたり起きなかつたりするが、 A は前方散乱に対してはかなり小さい量なので、 Γ が小さいながらも有限の場合にはどうなるかが問題となる。そこで (10) 式にもどつて、 $A=\delta=0$ とおくと

$$\xi(\xi^2 - 3\eta^2 + A - 2\Gamma\eta) = 0 \quad (23a)$$

$$-\eta^3 + 3\xi^2\eta + A\eta + \Gamma(\xi^2 - \eta^2) = 0 \quad (23b)$$

がえられる。まず (23a) より

$$\text{イ) } \xi = 0 \quad \text{又は}$$

$$\text{ロ) } \xi^2 = 3\eta^2 + 2\Gamma\eta - A. \quad (24)$$

このうち、ロ) の場合は (24) を (23b) に入れて成長条件 ($\eta > 0$) を求めると、それは ξ が実数であるという条件 ((24) の右辺が正) と矛盾する事が分る。次にイ) の場合は、(23b) より

$$\eta(\eta^2 + \Gamma\eta - A) = 0$$

となり、成長条件は

$$\eta = \frac{1}{2} \{ (\Gamma^2 + 4A)^{1/2} - \Gamma \} > 0$$

あるいは $A > 0$ となる。こうして前稿と同様、 Γ を入れても不安定性の条件は A の符号だけできまる事が分つた。しかし成長率は、 $A \gg \Gamma^2$ では前と同じでよいが、 $\Gamma^2 \gg A$ では

$$\eta \simeq A/\Gamma$$

となり、かなり小さくなる事が分る。なお最後の結果は S.B. の方法でも導かれる事を注意しておく。

§5 まとめと討論

我々は、前稿で展開した光子理論による永年方程式が、S.B.の波動理論によるものと全く同型である事を示した。この対応は、・光学的フォノン・の減衰と分散とを考慮に入れても成り立つ。この事は、光子的描象に立つても様々な量子状態の間の量子力学的コヒーレンスをきちんととり入れれば、波動理論と本質的に同じになる事を意味している。

しかし、我々の理論とS.B.の理論とでは、その定式化の仕方に著しい差があり、そのため、えられた永年方程式の取り扱い方にも必然的に差が出て来る。すなわち、S.B.では波の空間的増巾の性質を調べたのに対して、我々は光子の数の時間的増加に着目している。この違いはえられる結果にも著しい差異を生ずる。すなわち、S.B.では、散乱光の増巾が起るためには光学的フォノンの減衰か又は分散が不可欠であつたのに、我々の場合はそのどちらも必要なく、むしろフォノンの減衰 Γ が小さい程増巾率は大きくなる。特に $\Gamma=0$ の場合について反ストークス光のline shapeを調べると、それはS.B.の場合と同様強い指向性をもつ事が分つた。その指向性の度合は入射光の強度が増すと弱められる。反ストークス光のストークス光に対する強度の比は、成長のsaturationを無視できる範囲内では、高々10%程度である。

ところで、この空間的増巾と時間的増巾との違いは、実はプラズマにおける不安定性の理論において、かなり古くから、convective instability(空間的増巾)とnonconvective又はabsolute instability(時間的増巾)の違いとして知られている。^{3) 4)} Sturrock³⁾は、この違いは増巾器(前者)として使えるか、それとも発振器(後者)として使えるかの違いであるとしている。空間的増巾と時間的増巾のどちらか一方が起っている場合には、実験的にもそのいずれであるかを定める事ができる。すなわち、outputの強度が、資料の厚さと入射パルスの長さのいずれに敏感であるかを調べればよい。ところで、今問題としている誘導ラマン散乱の場合には、上の理論からも明らかなように、一次レーザー光の強さがあまり小さくなく $\sqrt{U} \lesssim \Gamma$ であると、時間的増巾も空間的増巾も同時に起つていと考えられる。このような場合の理論的取り扱い著しく複雑になる。しかし、1次光の強度を充分上げて $\sqrt{U} \gg \Gamma$ とする事ができれば、時間的増巾が

高野、西川

主となつて、我々の §4 の結果が使えるようになる。このような条件は、通常の実験条件のもとでは殆ど不可能かもしれないが、光学的フォノンの減衰の小さい物質、例えば固体をえらべば全然不可能でもないと思われる。

最後に、我々の理論と同様の光子的立場に立つた理論が2年程前中国の雑誌に発表されている事をつけ加えておく。⁵⁾ 彼らは、光子数の時間変化の方程式から平衡状態について議論している。しかし彼らは、「はだか」の振動数として $\omega_s = \omega_l - \omega_v$, $\omega_a = \omega_l + \omega_v$ (ω_v は光学的フォノンの振動数) のようなストークス、反ストークス光の成分だけを考えているため、スペクトル分布や角分布などは求められない。我々の理論は増巾の初期段階だけを論じているのであるが、いろいろなモードの散乱光を考えているので、分布についての議論ができたわけである。いいかえれば、彼らの理論は、古典論では、Garmire, Pandarese and Townes⁶⁾ に対応し、我々の理論は Shen-Bloembergen²⁾ に対応したものと云える。

最後に、この研究について、第2回東京国際夏季学校に参加された方々にいろいろ御討論をいただいた事、特に Haken 教授、物性研矢島達夫氏、理研清水忠雄氏に深く感謝いたします。また、貴重な時間をさいて中国語の判読を手伝つて下さった林清涼さんに深く感謝します。

Appendix I

この Appendix I では、前稿で無視した光学的フォノンの分散及び減衰を考慮に入れて、前稿の永年方程式を一般化し、それが S.B. のものと一致する事を示す。

出発点は前稿 (13) 及び (15) 式である。ここで

$$\frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N e^{i\mathbf{K} \cdot \mathbf{R}_j} b_j = Q_{\mathbf{K}} \quad (\text{A.1})$$
$$\frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{R}_j} b_j^+ = Q_{\mathbf{K}}^+$$

とおくと、(13)、(15) は *)

$$(\varrho - \varrho_{\mathbf{K}}) a_{\mathbf{K}} = \sqrt{N} V_{\mathbf{K}} (Q_{\mathbf{K}}^+ + Q_{-\mathbf{K}}) \quad (\text{A. 2})$$

$$(\varrho + \varrho_{-\mathbf{K}}) a_{-\mathbf{K}}^+ = -\sqrt{N} V_{-\mathbf{K}}^* (Q_{\mathbf{K}}^+ + Q_{-\mathbf{K}})$$

と書かれる。(A. 1)で定義された $Q_{\mathbf{K}}^+$, $Q_{\mathbf{K}}$ は通常「光学的フォノン」と呼ばれているものの生成、消滅演算子とみなすことができる。このように、我々の理論では、光学的フォノンが、two level atoms の強い外場の中での集団運動として、自然に定義される事に注意しておこう。さて、 $Q_{-\mathbf{K}}$, $Q_{\mathbf{K}}^+$ に対する方程式は、前稿 (16), (17) を使うと

$$\begin{aligned} (\varrho - \epsilon) Q_{-\mathbf{K}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j v_j \sum_{\mathbf{K}'} \{ V_{\mathbf{K}'} e^{-i[\mathbf{K} + \mathbf{K}'] \cdot \mathbf{R}_j} a_{\mathbf{K}'}^+ \\ &\quad + V_{\mathbf{K}'}^* e^{i[\mathbf{K}' - \mathbf{K}] \cdot \mathbf{R}_j} a_{\mathbf{K}'} \} \\ &= \sqrt{N} \nu [V_{-\mathbf{K}} a_{-\mathbf{K}}^+ + V_{\mathbf{K}}^* a_{\mathbf{K}}] \end{aligned} \quad (\text{A. 3})$$

$$(\varrho + \epsilon) Q_{\mathbf{K}}^+ = -\sqrt{N} \nu [V_{-\mathbf{K}} a_{-\mathbf{K}}^+ + V_{\mathbf{K}}^* a_{\mathbf{K}}] \quad (\text{A. 4})$$

と書かれる。ただし前稿同様 R.P.A. を使った。(A. 3), (A. 4) にはフォノンの分散及び減衰が含まれていないが、これは、もとのハミルトニアンにおいて、分子間の衝突や熱浴との相互作用を無視したためである。これを取り入れるには、例えば Senitzky⁷⁾ や Haake⁸⁾ らが行ったように、熱浴との相互作用までハミルトニアンに加えて、適当なユニタリー変換でその部分を消去してやればよい。すると、(A. 3), (A. 4) の左辺にくりこまれる部分の実部が分散を、又虚部が減衰を与えるようになる。ここではこれを省略して、S.B. にならつて現象論的に (A. 3), (A. 4) の左辺を

$$(\varrho - \epsilon) Q_{-\mathbf{K}} \rightarrow (\varrho - \epsilon_{\mathbf{K}} + i\Gamma) Q_{-\mathbf{K}}$$

*) ただし Appendix II に示す修正を要する。

高野、西川

$$(\varrho + \epsilon) Q_K^+ \rightarrow (\varrho + \epsilon_K + i\Gamma) Q_K^+$$

と書きかえる事で満足する事にする。ただし Γ が減衰率で、分散は $\epsilon_K = \sqrt{\epsilon^2 - \beta^2 K^2}$ という形を仮定する。上のおきかえを行うと、以下は前稿と全く同様にして永年方程式がえられる。途中の計算を省いて結果だけを記すと、まず前稿 (22) 式に対応して

$$D (\varrho - \varrho_K) (\varrho + \varrho_{-K}) + 2\epsilon \{ U_{-K} (\varrho - \varrho_K) - U_K (\varrho + \varrho_{-K}) \} = 0 \quad (A.5)$$

ただし

$$D = 2\epsilon \left\{ \frac{1}{\varrho - \epsilon_K + i\Gamma} - \frac{1}{\varrho + \epsilon_K + i\Gamma} \right\}^{-1} \\ = \varrho^2 - \epsilon_K^2 + 2i\varrho\Gamma \quad (A.6)$$

がえられ、また (25) に対応して

$$\{ x - (\epsilon_K - \epsilon) + i\Gamma \} (x + \delta) (x - A + \delta) + Ax = A U_{-K} - \delta A \quad (A.7)$$

がえられる。

この永年方程式を S.B. のそれと比較するために、(5)のおきかえ及び

$$\varrho_K \rightarrow \frac{ck_a}{\sqrt{\epsilon_a}} - \omega_l = \frac{ck_a}{\sqrt{\epsilon_a}} - \omega_a + (\omega_l - \omega_s)$$

を (A.5) に適用すると

$$\left(\frac{ck_a}{\sqrt{\epsilon_a}} - \omega_a \right) \left(\frac{ck_s}{\sqrt{\epsilon_s}} - \omega_s \right)$$

$$\begin{aligned}
&= -\frac{2\omega_0}{D} \left\{ U_{-\mathbf{K}} \left(\frac{ck_a}{\sqrt{\epsilon_a}} - \omega_a \right) + U_{\mathbf{K}} \left(\frac{ck_s}{\sqrt{\epsilon_s}} - \omega_s \right) \right\} \\
&= -\frac{2\pi\lambda^2 |E_L|^2}{D} \left\{ \frac{\omega_s}{\epsilon_s} \left(\frac{ck_a}{\sqrt{\epsilon_a}} - \omega_a \right) + \frac{\omega_a}{\epsilon_a} \left(\frac{ck_s}{\sqrt{\epsilon_s}} - \omega_s \right) \right\} \quad (\text{A.8})
\end{aligned}$$

がえられる。ただし、最後の式では(6)及びそれに対応する $U_{\mathbf{K}}$ の表式を代入した。

一方、S.B. で Γ 及び β を含む永年方程式は、(7)で

$$\begin{aligned}
D^* &= \omega_V^2 - \omega_V^{02} - 2i\omega_V\Gamma \\
&= \omega^2 - \epsilon_{\mathbf{K}}^2 - 2i\omega\Gamma
\end{aligned}$$

とおきかえたものに他ならない。今、(7)の D^* にこれを代入し、更に

$$\begin{aligned}
\frac{c^2 k_s^2}{\epsilon_s} - \omega_s^2 &= 2\omega_s \left[\frac{ck_s}{\sqrt{\epsilon_s}} - \omega_s \right] \\
\frac{c^2 k_a^2}{\epsilon_a} - \omega_a^2 &= 2\omega_a \left[\frac{ck_a}{\sqrt{\epsilon_a}} - \omega_a \right]
\end{aligned}$$

と近似すれば、直ちに (A.8) の複素共役をとった式がえられる。かくして光学的フォノンの分散と減衰を考慮に入れても、我々の理論と S.B. とでは全く同じ永年方程式に導く事が示された。

Appendix II

前稿¹⁾の修正。

◇ p240 (3) の第 1 式は

$$[b_j, b_j^+] = c_{j0}^+ c_{j0} - c_{j1}^+ c_{j1} \equiv \nu_j$$

◇ p241 以下では、電磁場が

$$e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{R} - \omega t)} a_{\mathbf{k}} + \text{h.c.}$$

高野、西川

という形になるようにする。従つて(6)式以下では指数の肩の符号をすべて逆転させる。例えば p243 (12) 式は

$$A(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\varrho e^{-i\varrho t} A(\varrho)$$

とする。

◇ p243 (11) 式は

$$\frac{dA}{dt} = \frac{\partial A}{\partial t} - i[A, H]$$

のあやまり。従つてその下の式は左辺に負の符号をつける。

◇ p243 (16), (17) 式は右辺に v_j がかかる。

◇ p244 一番下の式は右辺に頁の符号をつける。

◇ p245 下から 9 行目中程の「負の虚部」は「正の虚部」と修正。

◇ p247 (31) 式は

$$\eta \simeq \left\{ U_{-K} - \frac{\delta^2}{4} - \frac{5U_{-K}^2}{4A^2} + \frac{\delta U_{-K}}{2A} \right\}^{1/2}$$

と修正。従つて (32) 式は除去する。

文 献

- 1) 西川、高野、物性研究 6, 237 (1966).
- 2) Y.R. Shen and N. Bloembergen, P.R. 137A, 1787 (1965)
- 3) P.A. Sturrock, P.R. 112, 1488 (1958)
- 4) R.N. Sudan, Phys. Fluids 8, 1899 (1965)
- 5) Ti-Cheng Li and Yu-Ping Ho, Acta Physica Sinica
(物理学報) 21, 1933 (1965)
- 6) E. Garmire, F. Pandarese and C.H. Townes, P.R. Letters 11,
160 (1963)
- 7) J.R. Senitzky, P.R. 119, 1807 (1960) ; 123, 1525 (1961).
- 8) W. Weidlich and F. Haake, Z. Phys. 185, 30 (1965) ; 186, 203 (1965)